# 利用超高载量单原子策略实现高容量转换类电极材料稳定钠存储

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/14625.html

*本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！*

**利用超高载量单原子策略实现高容量转换类电极材料稳定钠存储**。相界面是多相反应之间的有效桥梁，对化学反应动力学和反应深度具有重要意义。可充电电池中的高容量转换型电极在充放电过程中因涉及多种固相物质，在循环过程中存在相聚集和颗粒生长等问题，这将导致固相接触度降低，从而引发逆反应的动力学缓慢，使得反应产物利用不充分，造成电极的可逆容量持续损失。

郑州大学化学学院陈卫华教授及其合作者利用高氮掺杂碳固定镍基硫化物负极的放电产物金属镍单原子，在钠离子电池高容量转换型电极材料和固相界面反应研究中取得重要进展。相关研究成果以Atomically dispersed Ni induced by ultrahigh N-doped carbon enables stable sodium storage为题，于2021年7月12日发表在Chem上。

随着新能源产业的快速发展和应用端需求的日益增长，对廉价高性能可充电电池（包括锂/钠/钾离子电池等）的电化学性能提出了更高的要求。具有理论比容量高、价格低、环境友好等优点的高容量转化型负极（即硫化物、硒化物和磷化物）作为电极材料被广泛研究。然而，循环过程中转化反应极差的持续可逆性致使容量快速下降，仍是阻碍其应用的巨大挑战之一。

电极材料中存在的原子级接触将有望进一步促进反应动力学，从而提高电池反应可逆性。然而，由于支撑材料上的不饱和配位点通常太少而无法锚定足够的单原子，导致电池中的相关报道很少。而在电池中的应用，在很大程度上需要高负载原子级材料。因此，进行原子级材料的研究在理论研究和应用研究方面均具有重要意义。杂原子掺杂碳基材料不仅能提供丰富的载流子密度和缺陷浓度，还可以提高配位能力促进对活性材料的固定。对此，可控的超高杂原子掺杂碳基材料为高负载原子级材料应用于高性能电池领域提供了可能。

研究人员设计并调控制备了具有超高氮掺杂碳基体硫化镍复合材料（Ni3S4@HNC），在活性材料镍基硫化物的转化反应过程中，一方面通过引入氮的配位作用可以增加对高载量镍原子的固定，抑制其自发团聚；另一方面放电产物硫化钠的存在可以进一步降低体系能量并稳定原子级镍，有效增大镍和硫化钠的接触界面，提升转换反应动力学和稳固循环中的高可逆性，实现储钠电极材料的高容量和长循环稳定性。

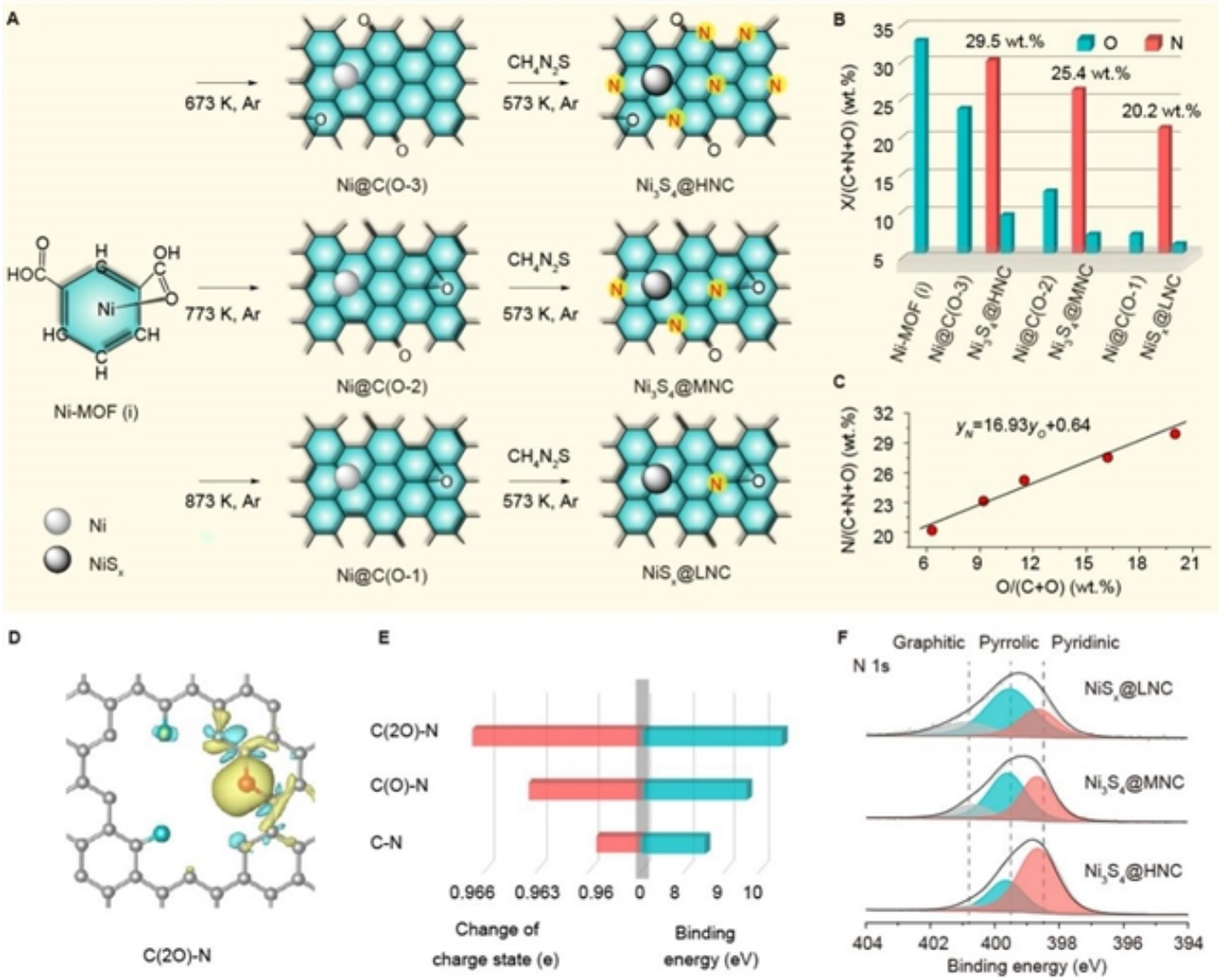



图1: 高氮掺杂碳基材料的合成和表征。A. 合成过程示意图；B. N和O的原子比例；C. 相应的拟合结果；D. 差分电荷密度；E. 不同模型结合能和电荷分析；F. N元素的XPS窄谱图。

具体而言，通过调控碳前驱体中氧原子比例获得了一系列具有不同氮掺杂的碳基硫化镍复合材料，在掺氮含量最高的碳基体中氮含量高达29.5 wt%。DFT计算表明，提高前驱体氧原子含量能够促进氮原子在碳表面电荷转移，提高氮原子与碳基体之间的结合能，有助于提升碳基体中的氮掺杂含量。

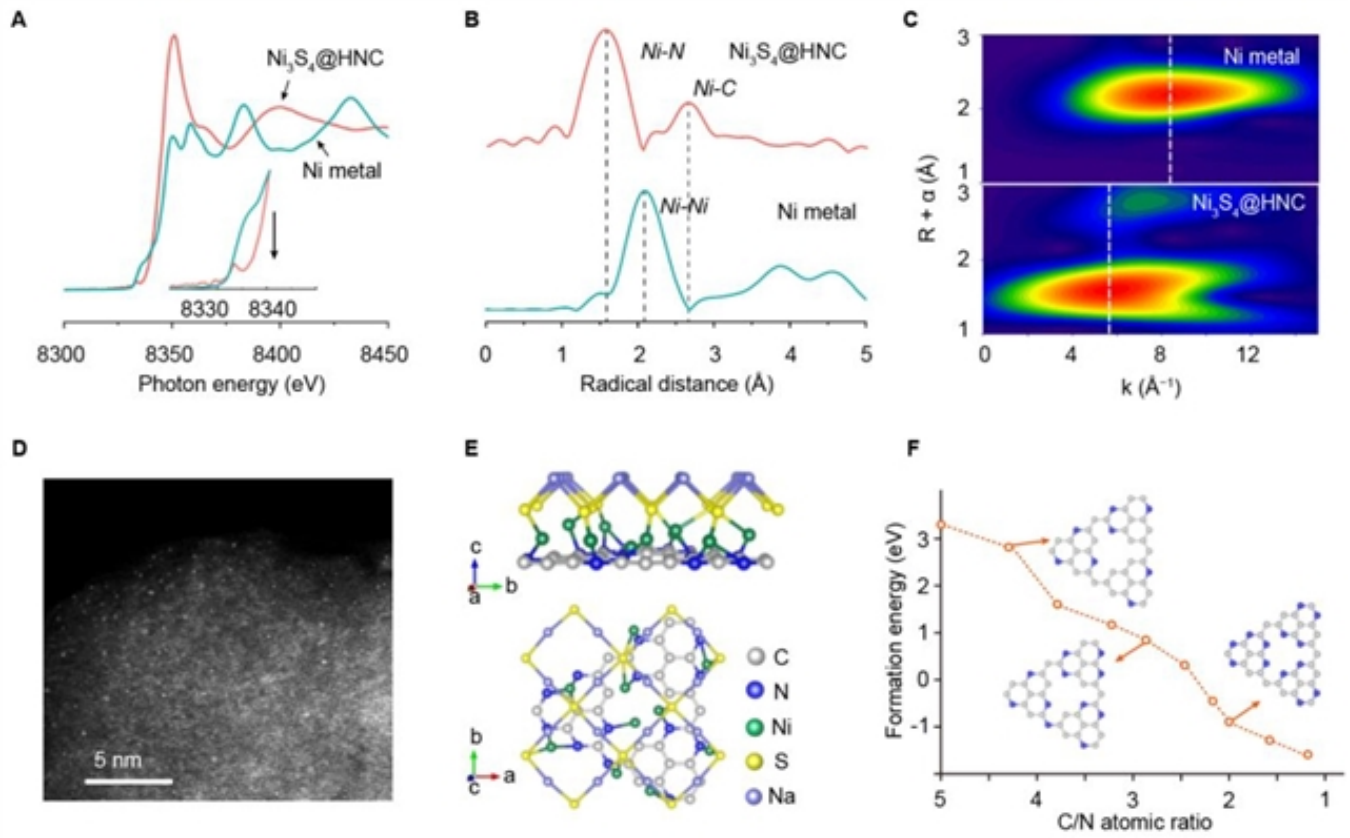



图2：原子级分布镍的结构表征。（A-C）同步辐射X射线吸收谱图；（D）球差校正高分辨透射电镜图；（E-F）DFT计算模型和形成能。

通过球差校正高分辨透射电镜技术和同步辐射吸收谱技术，研究人员观测到具有最高氮含量的氮掺杂碳硫化镍复合材料在放电过程中形成了原子级分布的镍。同时元素含量计算结果表明镍负载量（Ni/Ni-N-C）为54.9 wt%，高氮掺杂碳和硫化钠放电产物协同促进了高载量镍原子的稳定性。且该现象不受电解液影响，在酯基电解液和醚基电解液中均可被观察到。

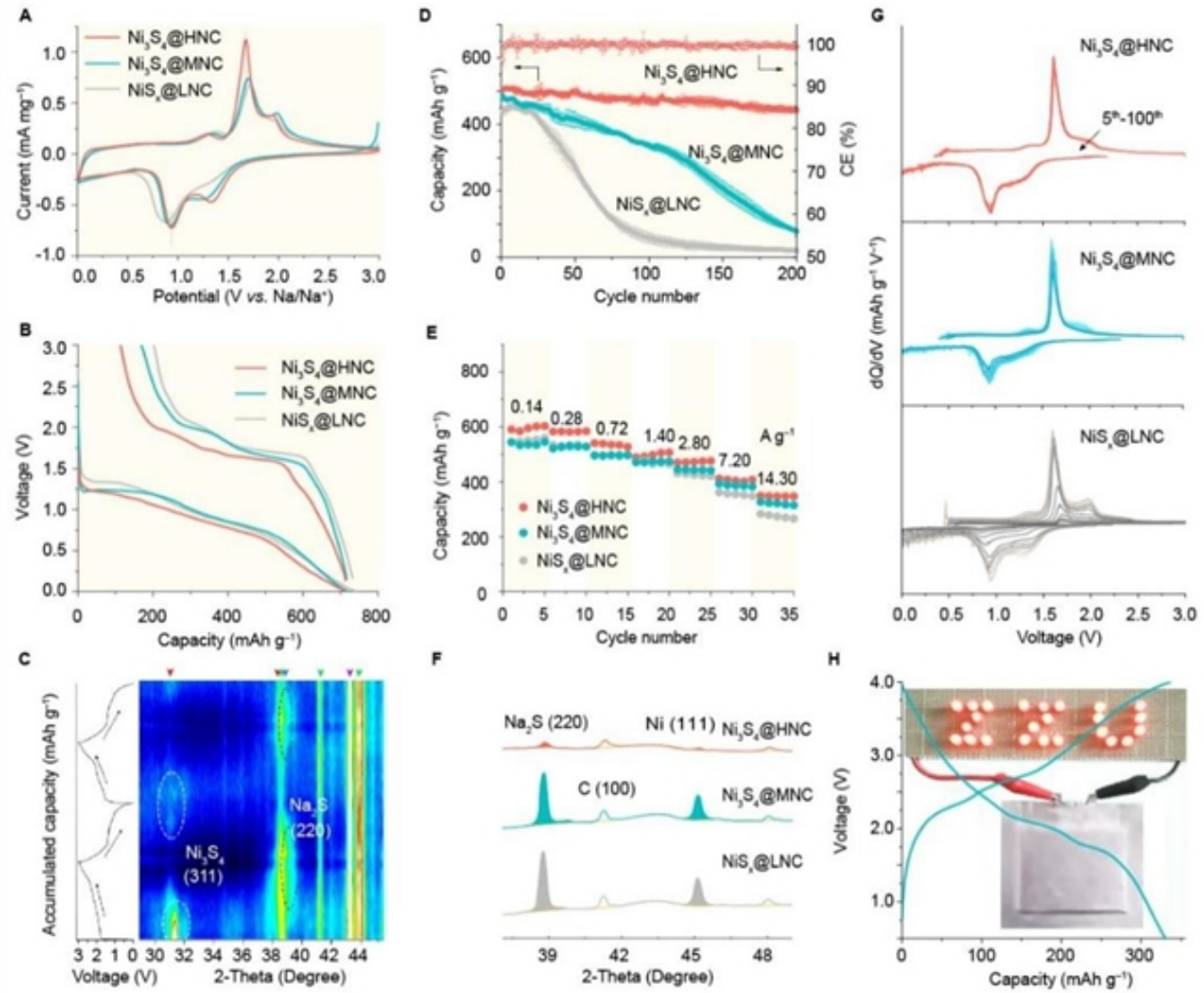



图3：组装的钠离子电池电化学性能。（A）循环伏安；（B）恒电流充放电曲线；（C）原位XRD；（D）循环稳定性；（E）倍率性能；（F）非原位XRD；（G）dQ/dV曲线；（H）软包电池图。

得益于硫化钠和原子级分散镍之间超高的固相反应界面接触面积，所组装的钠离子半电池表现出高度可逆的转换反应、较高的转换反应保持率，以及优异的循环稳定性（每周容量衰减0.061%）和倍率性能。与氟磷酸钒钠正极材料所组装的软包电池具有115.5 Wh kg-1的能量密度和可观的循环稳定性（循环50周容量保持92.1%），具有较好的潜在应用价值。

最后，研究人员认为，该项工作为高容量转换型电极的设计和固态化学反应的改进提供了新思路。

郑州大学化学学院博士生宋轲铭和硕士生刘杰飞为本文第一作者，陈卫华教授为本文通讯作者。（来源：科学网）

相关论文信息：https://doi.org/10.1016/j.chempr.2021.06.008

特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“ 来源 ”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费等事宜，请与我们接洽。
作者：陈卫华等 来源：《化学》

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发